

研究論文

フェライト顆粒の粉体物性の測定と圧縮試験によるその評価 — 顆粒粒子径分布の影響 —

小竹直哉,* 諏江勇祐,* 朱 娜,* 神田良照*

Powder Properties of Ferrite Granule and its Evaluation by Compression test of the Granule Particle Bed: Influence of the Granule Size Distributions

Naoya KOTAKE†, Yusuke SUE†, Zhu NA† and Yoshiteru KANDA†

The evaluation of the powder properties of the granule feed material for ferrite material production is very important. The fundamental properties of a powder are the packing characteristics and the flowability of the particle bed. In this study, we investigated the influence of the granule size distributions on the void fraction and the angle of repose of the granule particle bed. We found that the size distributions, which had the minimum values of the void fraction and the angle of repose.

The compression test of the ferrite granule particle bed was conducted by using a pellet test machine with the peculiar plunger and vessel.

Our results confirmed the correlations between the powder properties and its compression characteristics in the granule particle bed.

Key Words : Ferrite Granule, Granule Particle Bed, Gaudin-Schuhmann Distribution, Void Fraction, Angle of Repose, Compression Test

1. 緒言

フェライトは、軟磁性（ソフト）と硬磁性（ハード）があり、前者はインダクタ、トランス、チョークコイルおよびインピーダンス等の磁芯に使用され、後者は主に磁石として用いられる。本実験で用いるフェライトはソフトフェライトであり、電子機器の小型化、軽量化および高効率化とともにその磁芯も小型化、薄型化しており、その原料は顆粒体として調製される。磁芯や磁石は、フェライト顆粒を圧縮成形や焼成といったプロセスを経て製造されるために、原料顆粒の基本的な粉体物性を把握し評価することが、製造工程の省力化や高密度で良質な製品の生産に重要な鍵となる。フェライト顆粒は、噴霧乾燥法（スプレードライ法）によって生成されるため、粒子径は単分散ではなく、ある程度の粒子径分布を有しており、顆粒の粉体物性に影響し、後の製造工程や製品の品質にまで影響をおよぼすことが考えられる。

本研究では、顆粒を三成分の粒子径にふるい分けして粒子径分布を種々調製し、粒子層のタッピング充てん試験による空間率と注入法による安息角を測定し、顆粒の充てん性と流動性におよぼす粒子径分布の影響を調査した。さらに顆粒粒子層の圧縮試験を小型の杵、臼を用いて行い、その圧縮生成物の定量的、定性的評価を行った。そして、これらの実験より得られたフェライト顆粒の粉体物性と圧縮特性の関係について調査、検討し、本実験で行った圧縮試験法による顆粒の粉体物性の簡易評価の

可能性について検討したので以下に報告する。

2. 実験方法

2.1 顆粒試料

実験に用いた顆粒試料は、TDK（株）製の Mn-Zn フェライトで、顆粒密度は $2.50 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ であり、形状は Figure 1 に示すようにほぼ球形である。試料は、原料顆粒を JIS 試験用ふるいを用いてロータップシェーカーにより $125\sim 90 \mu\text{m}$, $90\sim 63 \mu\text{m}$, $63\sim 38 \mu\text{m}$ の大、中、小の各粒子径に調製した。Table 1 に大、中、小の各粒子とそれぞれの算術平均径を示す。顆粒の粒子径分布は、式(1) に示すゴードン・シューマン分布式の指数 m を種々変えて調製した。

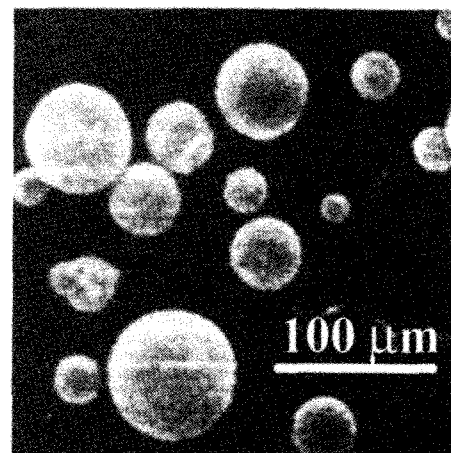


Figure 1 Scanning electron micrograph of sample.

平成18年7月11日受付;平成18年9月14日受理

*山形大学工学部物質化学工学科

〒992-8510 米沢市城南4-3-16

†Department of Chemistry and Chemical Engineering, Yamagata University, 4-3-16, Jonan, Yonezawa, 992-8510, Japan

Table 1 Feed sample used

Sample : Mn-Zn Ferrite granule	
Granule density : 2.50 g·cm⁻³	
Granule size (volume fraction, -)	
Large size	: 125~90 μm (0.32)
Medium size	: 90~63 μm (0.33)
Small size	: 63~38 μm (0.35)
Void fraction in particle bed (-)	
Large size	: 0.3834
Medium size	: 0.3825
Small size	: 0.3863

Table 2 Granule size distributions (volume fraction)

Distribution modulus <i>m</i>	Granule size			Distribution modulus <i>m</i>	Granule size		
	L	M	S		L	M	S
0.5	0.15	0.16	0.69	2.5	0.57	0.28	0.15
0.8	0.24	0.21	0.55	2.7	0.60	0.27	0.13
1.0	0.29	0.24	0.47	3.5	0.70	0.23	0.07
1.2	0.34	0.26	0.40	4.1	0.75	0.20	0.05
1.5	0.40	0.28	0.32	4.7	0.80	0.17	0.03
1.8	0.46	0.28	0.26	6.8	0.90	0.094	0.006
2.0	0.49	0.29	0.22				

(L: 125~90 μm, M: 90~63 μm, S: 63~38 μm)

$$Q = \left(\frac{x}{x_m} \right)^m \quad (1)$$

ここで、 x (μm) は顆粒粒子径、 x_m (μm) は最大顆粒粒子径、 Q (-) はふるい下積算分率である。

Table 2 には実験した指数 m とそのときの大、中、小の各粒子の体積分率を示す。また、顆粒試料は乾燥器において45℃、12時間以上乾燥させた後、デンケータ内で室温になるまで放冷し実験に供した。粒子層のタッピング充てんによる空間率の測定、注入法による安息角の測定ならびに圧縮試験は、それぞれ相対湿度60%未満の環境下で行なった。

2.2 タッピング充てん試験 (空間率の測定)

実験装置は、ホソカワミクロン (株) 製のパウダーテスタを用いた。Figure 2 にはタッピング方法の模式図を示す。充てん容器は内径 5 cm、内容積 100 cm³ の円筒形である。顆粒試料は、大、中、小の各粒子を良く混合して 20 g とし、これをタッピングカバーをかぶせた容器へ多層状にして合計 180 g を充てんし、Table 2 に示す粒子径分布についてそれぞれ検討した。

試料のタッピングは毎分50回の割合で容器ごと18 mmの高さから自由落下させた。タッピング時間は、粒子層の空間率がタッピング時間の増加に対してほぼ一定になる15分間とした。粒子層の空間率は、式(2)¹⁾より算出した。

$$\varepsilon = 1 - \frac{\rho_b}{\rho_p} = 1 - \frac{M}{\rho_p V} \quad (2)$$

ここで、 ε (-) は空間率、 ρ_p (g·cm⁻³) は顆粒密度 (=2.50 g·cm⁻³)、 ρ_b (g·cm⁻³) はタップ密度、 M (g) は充てん質量、 V (cm³) は容器内容積 (=100 cm³) である。また、測定後の容器内の充てん顆粒試料はふるい分けし、実験前後の粒子の粒子径分布が一定であることも確認した。また、空間率の測定は、一つの粒子径分布について5~7点測定し平均値を算出した。

2.3 流動性試験 (安息角の測定)

顆粒粒子層の流動性は、安息角の測定によって評価した。安息角 ϕ は、Figure 3 に示すようにロート (直径 7 cm、高さ 9.5 cm (円錐部高さ 5.5 cm)、排出口径 0.4 cm) の先端から所定の水平盤 (直径 7.8 cm) 上に試料 100 g を流出させる注入法で行い、分度器を用いて一つの粒子径分布について3回以上測定し、平均値を求めた。

2.4 圧縮試験 (圧縮生成物の測定)

圧縮試験には昭和測器 (株) 製ペレット試験機 PT II を用い

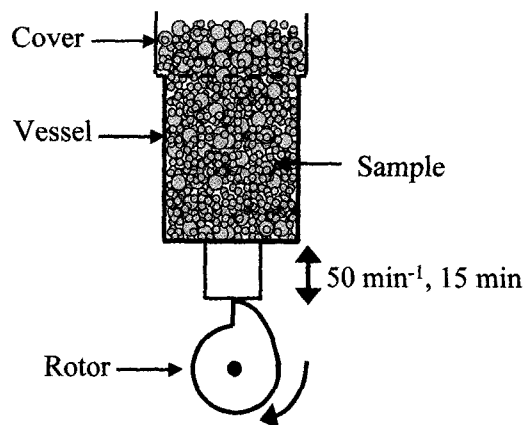


Figure 2 Measurement of void fraction.

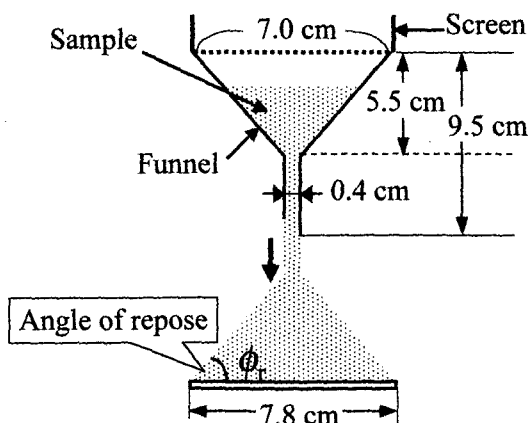


Figure 3 Measurement of angle of repose.

た。Figure 4 には試験装置の概略を示す。

装置は (1) 圧縮試験機, (2) 荷重変換器, (3) 荷重指示器, (4) 変位指示器, (5) 変位交換器, (6) プランジャー (杵), (7) 試験容器 (臼) で構成している。また, 試験に用いた杵と臼は窒化ケイ素製であり, その詳細を Figure 5 に示す。圧縮試験では同図に示すように臼の内径と杵の直径の差から生じる数 mm の隙間から, 杵からの圧力によって押し出される粒子群と, 圧縮される粒子群があり, このとき得られる生成物は円盤形状または小判型形状になる。本試験では, 圧縮生成物がサンプリングし易くなる条件を探るために予備実験を行い, Table 3 に示すように圧縮荷重は 10,000 N, 荷重速度は $0.5 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$, 試料充てん量は 1.464 g とした。圧縮試験は, 一つの粒子径分布について 7 点行ない, 圧縮生成物の質量は, 電子天秤によって測定し, 平均値を求めた。また, 生成物表面は, 走査型電子

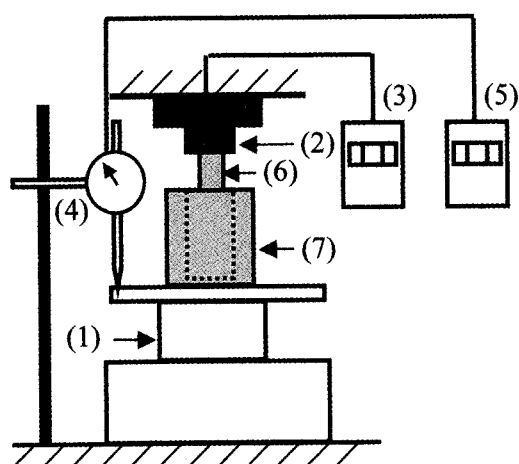


Figure 4 Apparatus of compression test,
(1) Pellet testing machine, (2) Load cell
(3) Load cell indicator,
(4) Differential transformer
(5) Displacement indicator
(6) Plunger, (7) Vessel.

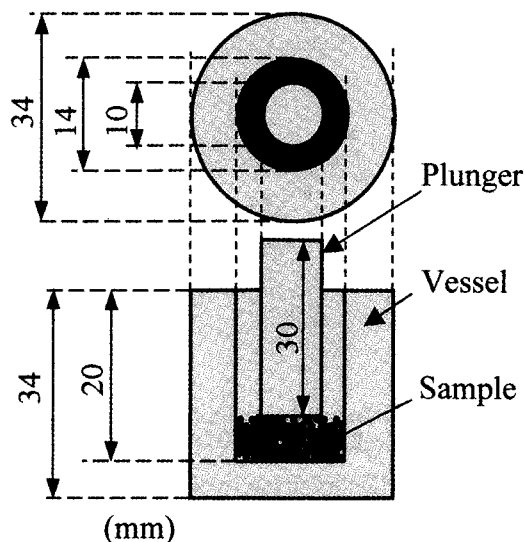


Figure 5 Plunger and vessel.

Table 3 Compression test conditions

Applied load	: 10,000 N
Deforming rate	: $0.5 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$
Mass of sample	: 1.464 g

顕微鏡 (日本電子 (株) 製 JSM-330) により観察した。

3. 結果および考察

3.1 顆粒粒子径分布による粉体物性の変化

Figure 6 に式 (1) の分布指数によるフェライト顆粒粒子層の空間率の変化を示す。この図より分布指数 m が 1.0~1.2 近傍の粒子径分布 (大粒子: 29~34%, 中粒子: 24~26%, 小粒子: 40~47%) において顆粒粒子層の空間率が低い, すなわち充てん性が高くなる様子がわかる。また, 同図には鈴木ら^{2~4)}が提出した球形粒子充てん層の空間率の推定モデルにより計算した粒子径分布による空間率の変化を破線で示している。この計算結果からも, 本実験における分布指数とほぼ同様の範囲において空間率が最小になる傾向が確かめられる。

Figure 7 には, 分布指数によるフェライト顆粒粒子層の安息角の変化を示す。先の顆粒粒子層の空間率の測定結果と同様に, 分布指数 m が概ね 1.0~1.2 の粒子径分布において安息角も最小となり, 顆粒の流動性が良くなることがわかる。Figures 6, 7 より, フェライト顆粒の充てん性と流動性におよぼす粒子径分布の影響は相似の関係にあり, 40-50% 程度の小粒子の存在によって, 大, 中粒子の間隙を埋めて充てん性を高くし, また小粒子が大, 中粒子に対してコロのような役割を有効に果たすことで粒子層の流動性が向上するものと推察される。

Figure 8 には, Figures 6, 7 の両図をもとに顆粒粒子層の空間率と安息角の関係を調べた結果を示す。この図より空間率は安息角の減少 (増加) とともに減少 (増加) しており, 顆粒粒子層の充てん性と流動性に相関関係を見いだすことができる。また, 同図には大坪の実験式⁹⁾を基に変形して本実験結果に適用して求めた式 (3) をあわせて示している。

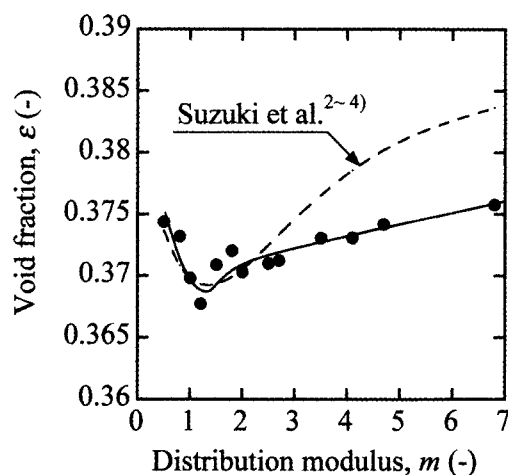


Figure 6 Variation of void fraction with distribution modulus in equation (1).

$$\varepsilon = 0.152 \phi_r^{0.637} + 0.277 \quad (3)$$

ここで ε (-) は顆粒粒子層の空間率, ϕ_r (rad) は顆粒粒子層の安息角である。

この関係より, フェライト顆粒においても粒子層の流動性から充てん性を推察することができると思われる。

3.2 顆粒粒子径分布による圧縮生成物量の変化

Figure 9 には, 一例として式(1)における分布指数 m が0.5と1.2のときの粒子径分布における圧縮生成物とその表面をそれぞれ写真撮影した様子を示す。本圧縮試験において, フェライト顆粒の粒子径分布は, 圧縮生成物の亀裂やひび割れ等の表面状態にほとんど影響しないが, 生成物の大きさ(質量)を変えることがわかる。

Figure 10には, 顆粒の粒子径分布による圧縮生成物質量の変化を示す。図より, 分布指数 m が1.2近傍の粒子径分布にお

いて生成物質量が最大になり, Figures 6, 7に示した顆粒粒子層の空間率と安息角の測定結果との関係性が推察される。これは, 粒子層の充てん性が高く(空間率が低く), 流動性が大きく(安息角が小さく)なる粒子径分布の条件では, 圧縮試験容器(臼)への顆粒充てん時に流動性が良いことで密充てんされやすくなり, さらにこの状態で圧縮荷重を受けると, 本圧縮試験容器である臼と杵に生ずる隙間から顆粒が逃げにくくなり, 顆粒粒子層が杵からの圧縮力をより直接的に受けるようになるために生成物が大きくなることが考えられる。

Figure 11には, 顆粒の粒子径分布を変えたときの粒子層の空間率と圧縮生成物質量の関係を示す。この図より, 顆粒粒子層の空間率は圧縮生成物の質量の増加とともに減少する傾向にあり, 顆粒粒子層の充てん性と圧縮特性に次式のような相関性を見いだすことができる。

$$\varepsilon = -0.218 m_p + 0.393 \quad (4)$$

ここで m_p (g) は, 圧縮生成物質量である。

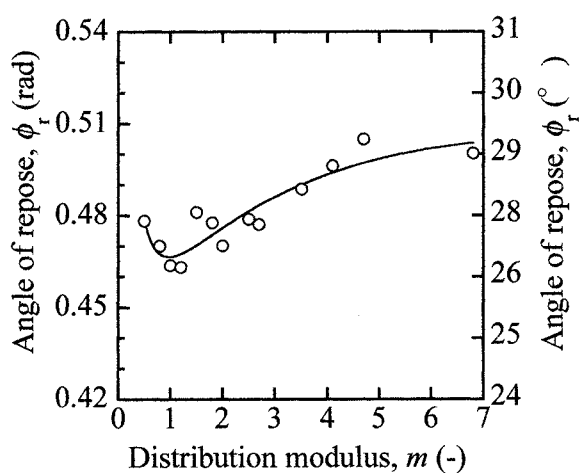
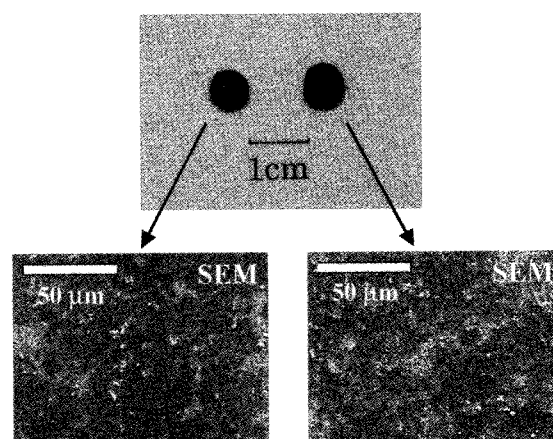


Figure 7 Variation of angle of repose with distribution modulus in equation (1).



(a) $m=0.5$ in equation (1) (b) $m=1.2$ in equation (1)

Figure 9 Photographs of compression product.

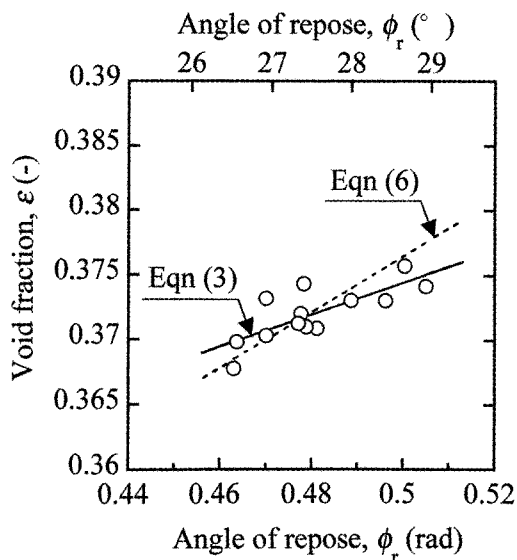


Figure 8 Relationship between void fraction and angle of repose.

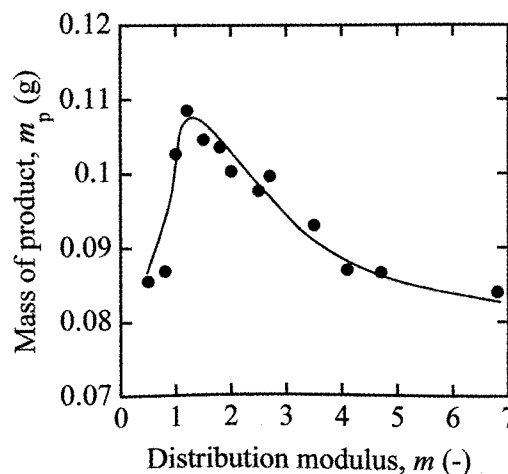


Figure 10 Variation of mass of product with distribution modulus in equation (1).

Figure 12には、同様に顆粒粒子層の安息角と圧縮生成物質量との関係を示す。両者の間には式(5) に示す関係が得られる。

$$\phi_r = -m_p + 0.577 \quad (5)$$

また、式(4) と (5) より式(6) が得られ、Figure 8 に示すように本圧縮試験の結果からもフェライト顆粒の充てん性と流動性の関係にある程度推定できると考えられる。

$$\varepsilon = 0.218 \phi_r + 0.267 \quad (6)$$

したがって、本研究におけるフェライト顆粒粒子層の単純な圧縮試験法から粒子層の充てん性や流動性を評価でき、顆粒粒子径分布が粉体物性におよぼす影響を予測できると考えられる。また、フェライト顆粒の粒子径分布が不明でも、本圧縮試験法のような単純な顆粒粒子層の特性評価により、顆粒の粉体物性を推察することができ、フェライト顆粒の製造条件、例えば、バインダーの量、種類もしくは水分量や、噴出ノズルサイズや

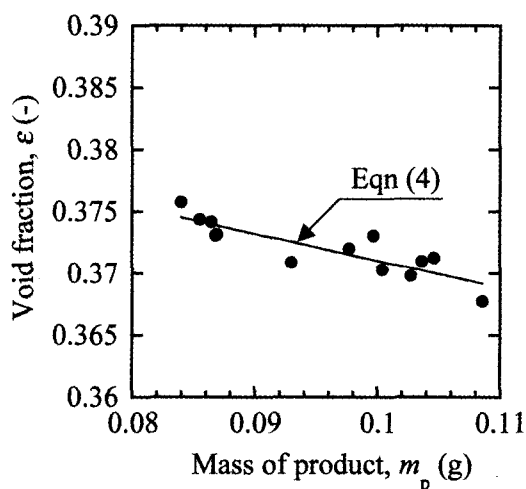


Figure 11 Relationship between void fraction and mass of product.

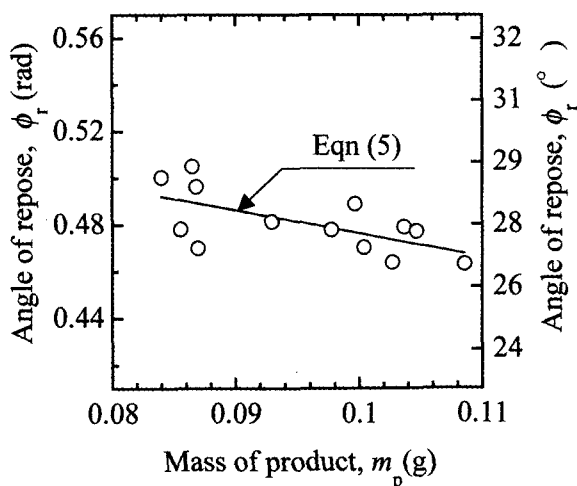


Figure 12 Relationship between angle of repose and mass of product.

圧力などの諸条件を見直すときに有効な評価方法になりうるものと考えられる。

4. 結言

本研究ではフェライト顆粒の粒子径分布が粒子層の充てん性および流動性に及ぼす影響をタッピング充てんによる空間率の測定と注入法による安息角の測定によって行なった。さらに顆粒粒子層の圧縮試験による生成物の測定を行ない、これらの粉体物性との関係を調べた結果、以下の知見を得た。

- 1) フェライト顆粒には、粒子層の空間率と安息角を最小にする粒子径分布の範囲 (式(1) の $m=1.0\sim 1.2$) が存在し、このとき充てん性と流動性が最も良くなることがわかった。また、空間率と安息角の間に相関性を見いだすことができた。
- 2) フェライト顆粒原料の粒子径分布を1) で示した範囲で調製できる顆粒の製造条件を検討することで圧縮成形時の圧力の低減や荷重時間などの短縮が見込まれるので磁性材料の製造コストを減らせる可能性がある。
- 3) 本研究における圧縮試験法により得られた生成物の質量は、粒子層の空間率および安息角の減少とともに増加する傾向が見いだせた。
- 4) 3) から測定が比較的容易で、測定試料も少量である本圧縮試験法により、粒子径分布の異なるフェライト顆粒の粉体物性を検討できる可能性を示した。

使用記号

m : 式(1) の分布指数	(-)
m_p : 圧縮生成物質量	(g)
M : 充てん質量	(g)
Q : ふるい下積算分率	(-)
V : 容器内容積	(cm^3)
x : 顆粒粒子径	(μm)
x_m : 最大顆粒粒子径	(μm)
ε : 空間率	(-)
ϕ_r : 安息角	(rad)
ρ_p : 顆粒密度	($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)
ρ_b : タップ密度	($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)

参考文献

- 1) 椿淳一郎, 鈴木道隆, 神田良照 (2002): 入門 粒子・粉体工学, 日刊工業新聞社, p.40.
- 2) 鈴木道隆, 八木章, 渡辺球雄, 大島敏男 (1984): 3成分球形粒子ランダム充填層の空間率の推定, 化学工学論文集, **10**, 721-727.
- 3) 鈴木道隆, 市場久貴, 長谷川勇, 大島敏男 (1985): 粒度分布のある多成分粒子ランダム充填層の空間率, 化学工学論文集, **11**, 438-443.
- 4) 鈴木道隆, 大島敏男 (1985): 粒度分布のある付着性球形粒子ランダム充填層の空間率推定, 粉体工学会誌, **22**, 612-617.
- 5) 大坪建 (1965): 粉粒体の集合特性の役割—安息角に関する実験法則について—, 粉体工学研究会誌, **2**, 179-188.